

令和 6 年 5 月 23 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K03890

研究課題名（和文）燃料のピストン圧縮改質による船舶用超排出ガスエンジンの実用化研究

研究課題名（英文）A Study on the Practical Application of Marine Ultra-low Emission Engines through Piston Compression Reforming of Fuels

研究代表者

柴田 元（Shibata, Gen）

北海道大学・工学研究院・准教授

研究者番号：70613785

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,900,000円

研究成果の概要（和文）：ディーゼルエンジンのピストン圧縮により液体燃料を合成ガス（水素、一酸化炭素）への改質実験を行い、化学動力学計算により化学反応解析を行なった。燃料の改質には当量比と改質時の最高到達温度が関与しており、通常のエンジン回転数では化学反応時間は十分に早い。酸素濃度6%から10%程度、当量比2から4の間で合成ガスの収率が高くなる。液体燃料ではスモーク排出が課題となるため、実験燃料をメタンに変更し着火用に微量の軽油を筒内噴射し、ドライリフォーミング反応を狙って希釈ガスを窒素から二酸化炭素に変更して実験をした。研究の結果、部分酸化反応と水性ガス逆シフト反応により合成ガスが生成していることが明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

エンジン車のさらなる高効率化が必要であり、市場の軽油やガソリンの着火性を変更できればエンジンはさらなる高性能化が期待できる。燃料の改質には触媒が用いられることが多いが耐久性が課題であり、ピストンの圧縮着火を利用した今回の研究は学術的に注目される。液体燃料の改質因子は圧縮時の温度と当量比であり、改質ガスの生成要因を突き止めることができた。また、後半はスモーク低減を目指して主燃料をメタンとし希釈ガスを二酸化炭素で実験をした。メタンや二酸化炭素でも水素や一酸化炭素の製造が可能であり、この結果は、エンジンを用いて温室効果ガスを削減し液体合成燃料の原料である合成ガスを製造できることを示唆している。

研究成果の概要（英文）：Reforming experiments were conducted to convert liquid fuel into syngas (hydrogen and carbon monoxide) through piston compression in a diesel engine, followed by chemical reaction analysis using chemical kinetics calculations. The reforming process of the fuel was influenced by the equivalence ratio and the peak temperature reached during reforming, with chemical reaction times being sufficiently rapid at normal engine speeds. The yield of syngas was found to be highest at oxygen concentrations of approximately 6% to 10% and equivalence ratios between 2 and 4.

Due to the issue of smoke emissions associated with liquid fuel, the experimental fuel was switched to methane, with a small amount of light oil injected into the cylinder for ignition. The diluent gas was changed from nitrogen to carbon dioxide to facilitate the dry reforming reaction. The results of the study revealed that syngas was produced through partial oxidation reactions and the reverse water-gas shift reaction.

研究分野：熱工学分野

キーワード：燃料改質 ピストン圧縮 ディーゼルエンジン 合成ガス バイオガス 部分酸化反応 水性ガスシフト反応

1. 研究開始当初の背景

船舶用ディーゼルエンジンでは外洋では軽油を、沿岸部では天然ガスを主燃料とするデュアルフューエル運転を行っている。しかし、外洋を航行している時も使用していない天然ガスを輸送しなければいけないことは無駄であり、燃料を1種類に絞り必要に応じて燃料改質により合成ガスを作り出せることが望ましい。さらに、生成される合成ガスを用いて燃料の着火性を変更することができれば船用エンジンの高性能化が期待できる。

これまでにガソリンなどの軽質炭化水素を触媒で改質した例はあるが、触媒の耐久性が課題であった。また、沸点範囲の高い軽油を触媒で改質するには、加熱や高圧噴射による微粒化が必要となる。このような研究背景のもと、超濃混合気をディーゼルエンジンのピストン圧縮を利用して一部の燃料を燃焼させ、発生する燃焼熱を利用した燃料改質について研究を進めた。

2. 研究の目的

本研究ではエンジン排出ガス中に多量に含まれている水蒸気および二酸化炭素を排出ガス再循環システム (EGR) により再利用し、化学反応の観点から二酸化炭素改質反応、水蒸気改質反応、水性ガス逆シフト反応による水素、一酸化炭素、メタンなどの改質ガスの能動的収量制御を行うことで、単一燃料の積載による船用ディーゼルエンジンの超高効率運転と排出ガスの低減を目指す。

3. 研究の方法

(1) 液体燃料 (ノルマルヘプタン, サロゲートナフサ) の改質実験

圧縮比 18.5 の実験用単気筒ディーゼルエンジンに軽油の代替としてノルマルヘプタンを用いたエンジン実験を行った (図 1 参照)。また、反応プロセスを調べるために化学動力学計算ソフト CHEMKIN Pro を用いて解析を実施した。低酸素状態での過濃混合気を作成するために EGR (Exhaust gas recirculation) を模擬した窒素で吸気を希釈し、当量比と吸気温度をパラメータに改質実験を実施した。実験では、ノルマルヘプタンから水素、一酸化炭素、メタン、エチレンといった改質ガスの収量に関する要因を調べるとともに改質ガスへの反応プロセスについて調べた。さらに、実用化を想定し、ナフサを模擬したサロゲートナフサによる実験も実施した。

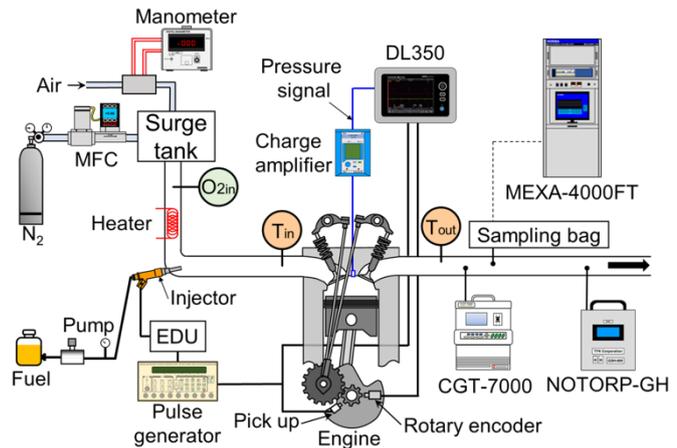


図 1 液体燃料の改質実験装置図

(2) ガス燃料 (天然ガス) を用いたデュアルフューエル改質実験

上記の液体燃料の実験では改質により生成するスモークが課題であった。スモークは混合気中の局所的な過濃領域から生成されている可能性があるため、本実験では主成分がメタンの天然ガスを用いた改質実験を行った。天然ガスはセタン価が低いいため通常のディーゼルエンジンでは圧縮着火をしないため、少量の軽油噴射を着火源とするデュアルフューエル方式を採用した。このため、旧来のエンジンでは対応できないため、直接噴射式ディーゼルエンジンを新たに導入した。また、希釈ガスには実際のエンジンから排出される二酸化炭素を用いた。この研究では、水性ガスシフト反応 ($\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \text{CO}_2 + \text{H}_2$) や炭酸ガス改質反応 ($\text{CH}_4 + \text{CO}_2 \rightleftharpoons 2\text{CO} + 2\text{H}_2$) などによるガス燃料の改質促進を期待した。

4. 研究成果

(1) 液体燃料 (ノルマルヘプタン, サロゲートナフサ) の改質実験の成果

はじめに化学動力学計算によるノルマルヘプタンから合成ガスの生成シミュレーションを実施した (図 2 参照)。当量比と初期温度によって生成する改質ガスの収率は異なる。当量比が 2 以下では水蒸気と二酸化炭素の収率が高く、当量比 2 から 4 の範囲で水素と一酸化炭素の収率が多くなり、初期温度が高いほど多く生成する。一方、メタンは当量比 4 以上で、エチレンは当量比 5 以上で収率が多い。この結果は、当量比が低い状況では燃焼による酸化反応が主体であるため水蒸気と二酸化炭素が生成するが、当量比が 2 以上になると酸化反応が一酸化炭素で止まり、同時に水素が生成していると考えられる。さらに当量比が 4 以上になるとノルマルヘプタンの部分酸化反応が進まないためメタンやエチレンの生成量が増えていることを示している。この結果を受けて、ディーゼルエンジンによる実験を実施した。

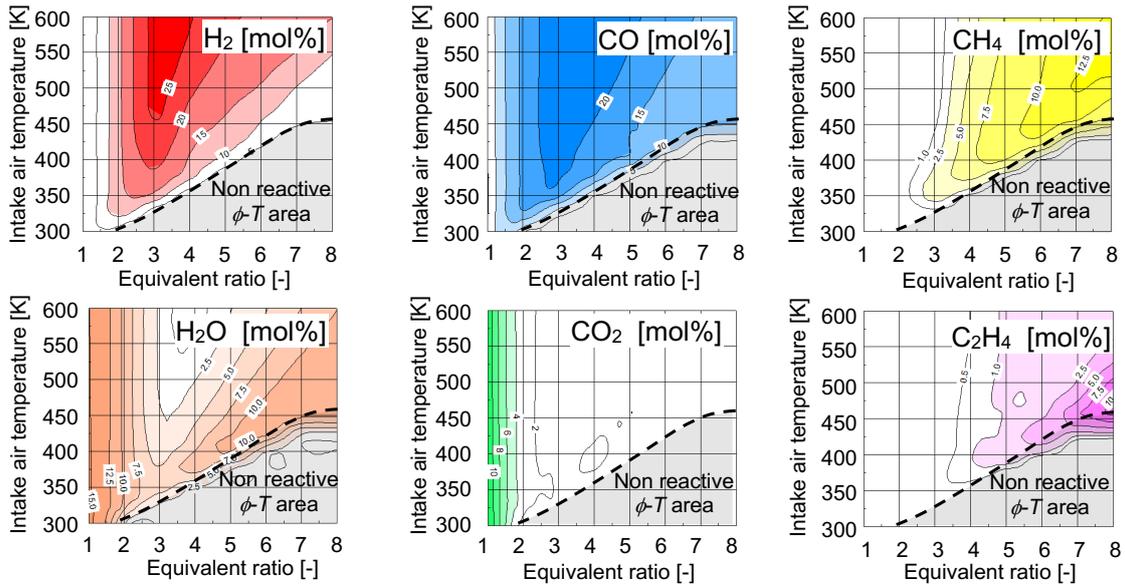


図2 ノルマルヘプタンの改質反応 (パラメータ: 吸気温度, 当量比) (シミュレーション)

ディーゼルエンジン実験では、圧縮比を 16, 18, 20 の 3 種類に変更し、各ガスの収率を計測した。実験結果を図 3 に示す。この図によれば、各改質ガスの収率は圧縮比には関係しておらず、シリンダ内の最高到達温度で整理できる。また、ここにはデータを掲載していないが、エンジン回転数を変更した実験 (800, 1000, 1200 rpm) も実施しており、改質反応にはエンジンの回転数の影響を受けておらずエンジン回転数に対して化学反応が十分に早いことが明らかとなった。図 3 において、水素と一酸化炭素はシリンダ内の最高温度が高いほど収率は高くなるが、1250K 以上では一酸化炭素から二酸化炭素への生成が増えるために一酸化炭素の収率の傾きが変化する。メタンやエチレンはノルマルヘプタンから分解してエチレンが生成し、エチレンが分解してメタンが生成し、メタンが分解して水素や一酸化炭素が生成するプロセスを取るため、収率のピーク温度はエチレンの方がメタンより低くなる。

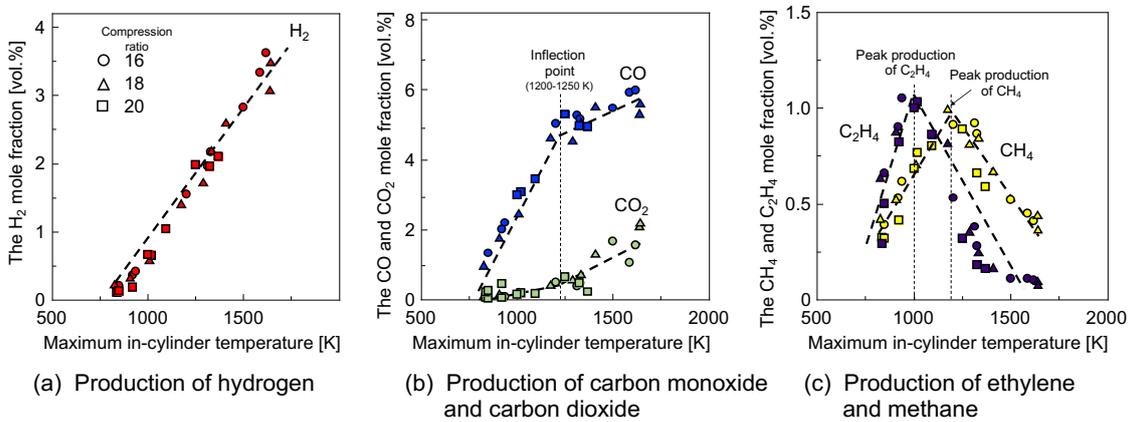


図3 ノルマルヘプタンから生成する各改質ガスの収率 (パラメータ: 圧縮比)

燃焼中の反応を、低温酸化反応期間 (LTO: Low temperature oxidation), 予熱着火期間 (PTI: Pre-thermal ignition), 熱着火期間 (TI: Thermal ignition), 後段燃焼期間 (ATI: After thermal ignition) の 4 領域に分割して解析を行った (図 4 参照)。この図によれば、水素や一酸化炭素は低温酸化反応期間から後段燃焼期間に至るあらゆる条件下で生成しており、単なるピストン圧縮改質反応だけでは改質ガスの生成量を制御することは難しい。また、図 3 においては水素や一酸化炭素はそれぞれ温度に対して直線的に収率が增加するため、例えば水素の収率を増やして一酸化炭素の収率を減らすようなことは難しい。しかし、実際のエンジンの EGR ガス中には二酸化炭素が混合しているので、EGR 率を変更して生成した水素や一酸化炭素を水性ガスシフト反応 ($\text{CO} + \text{H}_2\text{O} \rightleftharpoons \text{CO}_2 + \text{H}_2$) や炭酸ガス改質反応 ($\text{CH}_4 + \text{CO}_2 \rightleftharpoons 2\text{CO} + 2\text{H}_2$) を用いてそれぞれ個々に収率を能動的に変更できると考えられる。一方、メタンやエチレンはノルマルヘプタンが分解する過程で生成される最終の炭化水素であるため生成プロセスは限定されており、反応温度で収率を制御できると考えられる。実用化を想定しサロゲートナフサを用いて実験を行ったが実験結果はノルマルヘプタンと同様であった。

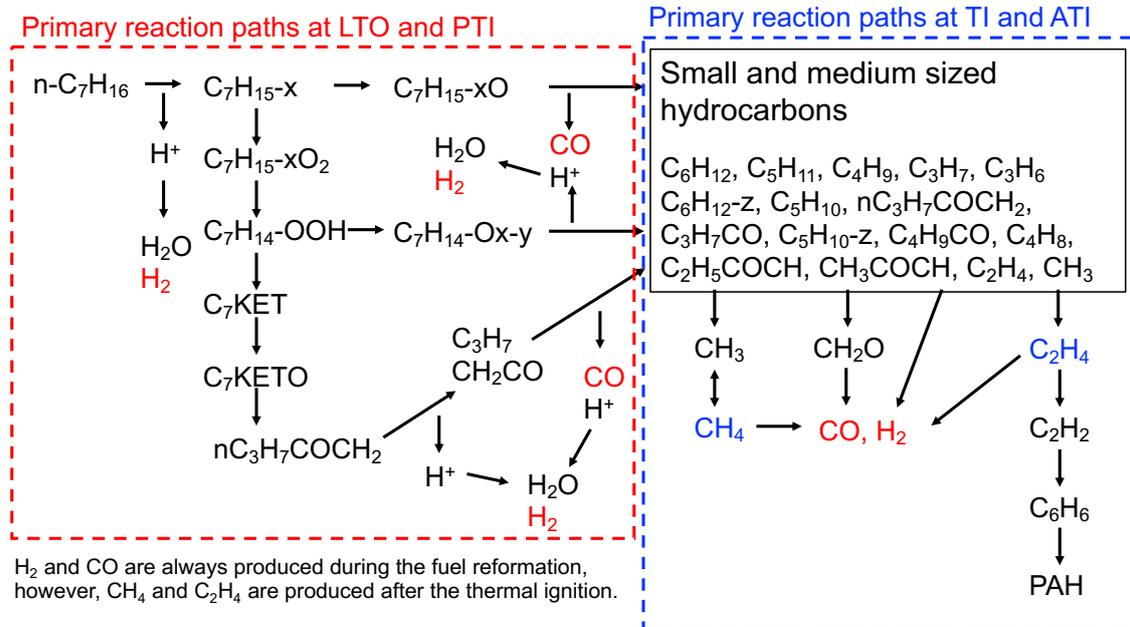


図4 ノルマルヘプタンから水素，一酸化炭素，メタン，エチレンへの改質プロセス

液体燃料の改質実験では，改質時の当量比と筒内最高温度が関与しており，当量比2以下では二酸化炭素と水蒸気が生成するが，当量比2から4で水素と一酸化炭素の収率が多くなり，当量比4以上でメタンやエチレンの生成が増えることが成果として得られた。

しかし，液体燃料を用いた際には当量比3以上でスモークがエンジンから大量に排出されることが課題である．この原因としては液体燃料が燃焼する際のシリンダ内の局所的な過濃混合気の存在が考えられ，次の実験ではメタンを主成分とする天然ガスを用いた実験を実施した．また，二酸化炭素を用いた水素と一酸化炭素の収率制御の可能性についても調べた．

(2) ガス燃料（天然ガス）を用いたデュアルフューエル改質実験の成果

実験では吸気中にメタンと二酸化炭素を供給し，シリンダ内に直接噴射した軽油の燃焼を火種にメタンの改質を行っている．図5はメタンと二酸化炭素のモル比を0.94と1.87とした際の吸気側（Intake）と排気側（Exhaust）のカーボンバランスを比較したものである．エンジンでは軽油が燃焼した際に生成する二酸化炭素も改質反応に寄与するため，二酸化炭素の少ない条件（モル比1.87）においても一酸化炭素やメタンの収量を多く取ることができる．当量比1.87では二酸化炭素が19.7%も排出されており，吸気の二酸化炭素の供給を断っても軽油の燃焼で生成する二酸化炭素だけで改質反応を行うことができ，COの収率も多くなると考えられる．

この結果を踏まえて，吸気に二酸化炭素の供給をせずに軽油の燃焼した際に生成する二酸化炭素とメタンで改質反応実験を行った．実験結果を図6に示す．実験は吸気への酸素濃度とメタンの供給量をそれぞれ5%から10%の範囲で変更した際にピストン圧縮改質により生成する水素，一酸化炭素，メタンと，排気中の二酸化炭素濃度について，シリンダ内の最高温度で整理した．実験の結果，酸素濃度が高くなるにつれて，シリンダ内の最高温度が高くなり，その結果，水素と一酸化炭素の収率は大きくなる．

また，シリンダ内の最高温度が高くなるとメタンの改質が進行するため，メタンの収率は低くなる．一方，吸気に二酸化炭素を供給しないで改質を行うと，図6(a)に示すように，エンジンからの二酸化炭素の排出を1%以下に抑えることができる．この条件でのピストン圧縮改質反応ではエンジン出力を得ることができるので，エンジンの出力を得られかつエンジンからは殆ど二酸化炭素を排出しないという，興味深い結果を得ることができた．

最後に化学動力学計算により調べた反応プロセスを図7に示す．この結果によれば，酸素が存在

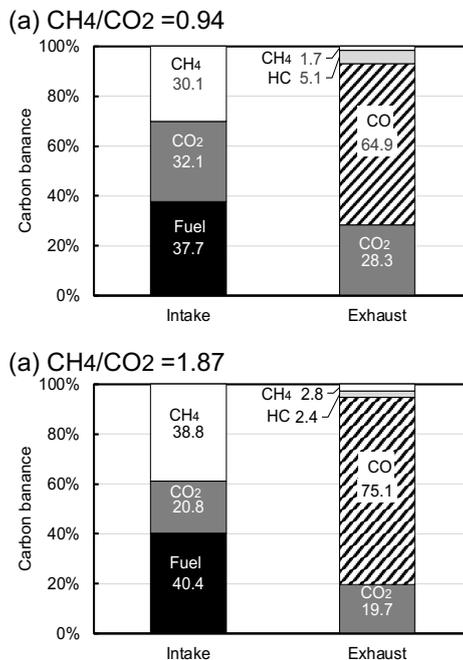


図5 吸気と排気のカーボンバランス

する期間は部分酸化反応が起きており、酸素が消費されてから改質反応（主に水性ガス逆シフト反応）が進行することがわかった。
 なお、今回の実験ではガス燃料を用いてもスモークの低減を図ることは出来なかったが、例えば二酸化炭素の代わりに吸気系に水蒸気を供給すれば炭素と水蒸気から一酸化炭素と水素を生成しスモークの低減を図れる可能性があり、今後の研究に期待される。

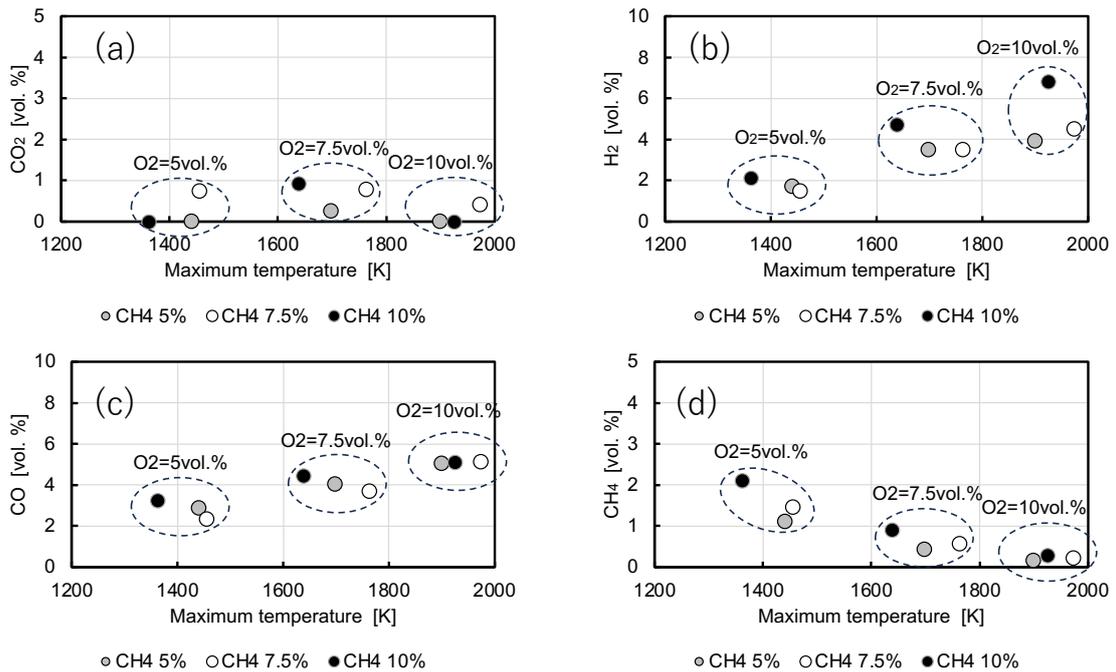


図6 メタンと吸気酸素濃度をパラメータとした各ガスの収率 ((a)二酸化炭素, (b)水素, (c)一酸化炭素, (d)メタン)

ガス燃料を用いたデュアルフェューエル改質実験より、下記の①から③が成果として得られた。

- ① ピストン圧縮による改質反応は、酸素が存在している間は部分酸化反応が起こり、部分酸化反応終了後に改質反応がおこる (図7参照)。今回の条件では、改質反応は主に水性ガス逆シフト反応が支配的であった。
- ② 水素と一酸化炭素はシリンダ内最高温度の上昇に伴い生成ガス割合は増加する。吸気中に水蒸気や二酸化炭素を供給し水蒸気改質反応や水性ガスシフト反応、炭酸ガスシフト反応などを利用すると水素と一酸化炭素の生成割合を制御しスモークを低減できる可能性がある。
- ③ 吸気に二酸化炭素を供給せずにエンジン燃焼時に発生する二酸化炭素だけで改質をさせると、エンジンから排出される二酸化炭素(温室効果ガス)を大幅に削減できる。

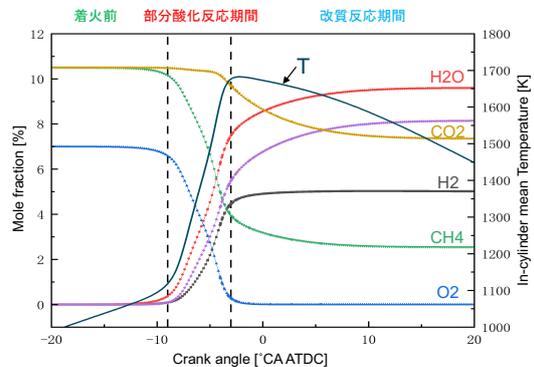


図7 シリンダ内での改質プロセス

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 1件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Shibata Gen, Asai Go, Ishiguro Shuntaro, Watanabe Yusuke, Kobashi Yoshimitsu, Ogawa Hideyuki	4. 巻 online
2. 論文標題 Fuel reformation by piston compression of rich air-fuel mixture	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 International Journal of Engine Research	6. 最初と最後の頁 1~22
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1177/14680874211047527	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 森 大成, 柴田 元, 小川 英之, 小橋 好充
2. 発表標題 内燃機関のピストン圧縮によるサロゲートナフサの部分酸化改質
3. 学会等名 内燃機関シンポジウム（自動車技術会と日本機械学会の共催）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 本間 有慧, 陳 登沛, 柴田 元, 小川 英之, 川邊 研, 南埜 良太
2. 発表標題 エンジンのピストン圧縮を利用したバイオガスのドライリフォーミング反応による合成ガスの生成
3. 学会等名 内燃機関シンポジウム（自動車技術会と日本機械学会の共催）
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------